

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

08.11.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2003年10月 3日

出 願 番 号
Application Number: 特願2003-346262
[ST. 10/C]: [JP2003-346262]

出 願 人
Applicant(s): JSR株式会社

REC'D 02 DEC 2004

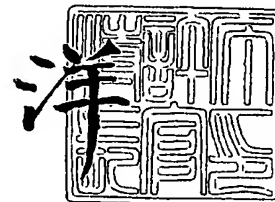
WIPO PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年10月27日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



出証番号 出証特2004-3096979

【書類名】 特許願
【整理番号】 P2939-0661
【提出日】 平成15年10月 3日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H05B 33/10
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都中央区築地五丁目 6 番 1 0 号 J S R 株式会社内
 【氏名】 鈴木 昌則
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都中央区築地五丁目 6 番 1 0 号 J S R 株式会社内
 【氏名】 川田 隆
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都中央区築地五丁目 6 番 1 0 号 J S R 株式会社内
 【氏名】 溝内 博行
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都中央区築地五丁目 6 番 1 0 号 J S R 株式会社内
 【氏名】 森川 明彦
【特許出願人】
 【識別番号】 000004178
 【氏名又は名称】 J S R 株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100094190
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 小島 清路
 【電話番号】 052-682-8361
 【ファクシミリ番号】 052-682-8360
【選任した代理人】
 【識別番号】 100111752
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 谷口 直也
 【電話番号】 052-682-8361
 【ファクシミリ番号】 052-682-8360
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 019471
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9808090
 【包括委任状番号】 0103242

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

基板と、陽極層と、発光層と、陰極層と、を順次含む発光素子、及び、該発光素子の発光面側に配設される封止部材を備えるエレクトロルミネッセンスディスプレイパネルに用いられる有機EL用透明封止材であって、柔軟性重合体組成物から形成され、且つ、上記発光素子の発光面と上記封止部材との間に配設されることを特徴とする有機EL用透明封止材。

【請求項 2】

本有機EL用透明封止材を厚さ 0.5 mm とした場合、その全光線透過率は 90 % 以上である請求項 1 に記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 3】

上記柔軟性重合体組成物はエラストマー組成物である請求項 1 又は 2 に記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 4】

上記柔軟性重合体組成物は、ジエン系重合体、オレフィン系重合体、アクリル系重合体、ウレタン系重合体、ポリアミド系重合体、ポリエステル系重合体、塩化ビニル系重合体、フッ素系重合体及びシリコン系重合体から選ばれる少なくとも 1 種の重合体を含む請求項 1 乃至 3 のいずれかに記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 5】

上記ジエン系重合体は、スチレン・ブタジエン共重合体及びその水素化物、スチレン・イソプレン共重合体及びその水素化物、ブタジエンブロック共重合体及びその水素化物、スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体及びその水素化物、並びに、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体及びその水素化物から選ばれる少なくとも 1 種である請求項 4 に記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 6】

上記ジエン系重合体は、共役ジエン系ブロック重合体の水素化物であり、該水素化物は、ビニル結合含量が 25 % 未満であるブタジエン重合体ブロック (I) と、共役ジエン単位 (a1) 及び他の単量体単位 (a2) の質量比が $(a1) / (a2) = (100 \sim 50) / (0 \sim 50)$ であり、ビニル結合含量が 25 ~ 95 % である重合体ブロック (II) とを、それぞれ分子中に少なくとも 1 つ有する共役ジエン系ブロック重合体中の、オレフィン性不飽和結合が水素化されたものである請求項 4 又は 5 に記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 7】

上記オレフィン系重合体は、エチレン・ α -オレフィン共重合体、及び、エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体から選ばれる少なくとも 1 種である請求項 4 に記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 8】

上記エチレン・ α -オレフィン共重合体、及び、上記エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体は、カルボキシ基、ヒドロキシ基、エポキシ基、アミノ基、アルコキシシリル基、スルホン酸基及びニトリル基から選ばれる官能基を有する請求項 7 に記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 9】

上記柔軟性重合体組成物は、金属イオン及び／又は金属化合物を含む請求項 7 又は 8 に記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 10】

上記柔軟性重合体組成物は、液状物質を含む請求項 1 乃至 9 のいずれかに記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 11】

上記液状物質の 40 °C における動粘度が $800 \text{ mm}^2 / \text{s}$ 以下である請求項 10 に記載の有機EL用透明封止材。

【請求項 1 2】

上記液状物質の含有量は、上記重合体成分の合計 1 0 0 質量部に対して、5 0 ～ 5 0 0 質量部である請求項 1 0 又は 1 1 に記載の有機 E L 用透明封止材。

【請求項 1 3】

本有機 E L 用透明封止材は薄肉体である請求項 1 乃至 1 2 のいずれかに記載の有機 E L 用透明封止材。

【書類名】明細書

【発明の名称】有機EL素子用透明封止材

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機EL素子用透明封止材に関する。更に詳しくは、エレクトロルミネッセンスディスプレイパネル（以下、単に「ELディスプレイパネル」という。）を構成する発光素子の発光面側の空隙を充填するために用いられる有機EL素子用透明封止材に関する。本発明の有機EL素子用透明封止材は、携帯電話、携帯情報端末、デスクトップ型コンピュータ、ノート型コンピュータ、テレビジョン、車載用情報機器、時計、その他各種表示装置等用のELディスプレイパネル等に好適である。

【背景技術】

【0002】

EL素子は、自己発光するため、これを備える表示装置とした場合、視認性が高い。このような性質を利用し、無機EL素子に比べて印加電圧を低下させることのできる有機EL素子を備えた高性能の表示装置、即ち、有機ELディスプレイが検討されている。

有機EL素子は、ガラス等からなる基板の上に陽極層、発光層及び陰極層が順次形成された構成が基本である。性能を向上させるために各層の間に機能層を設ける場合もある。

上記のような構成の有機EL素子は、陽極層と陰極層の間に通電することによって発光させることができる。しかし、素子の周囲に水分、不純物等が存在すると、素子を構成する材料が侵され、劣化を招くこととなる。劣化した有機EL素子を備える表示装置を用いると、発光欠陥、即ち、ダークスポットが発生し、視認性の悪化につながるものとなる。

【0003】

また、有機EL素子を備える表示装置は、通常、有機EL素子を覆い、密閉するために、ガラス等からなる透明基板（封止缶の場合もある。）等が備えられる。上記問題点を解決する方法として、有機EL素子と、透明基板との間に生じる空間に、脱水剤を配設する方法、紫外線硬化樹脂からなる透明封止材を用いる方法、吸着剤を含有した不活性液体を充填する方法（特許文献1参照）等が開示されている。しかし、いずれもダークスポットの発生の抑制は不十分である。また、紫外線硬化樹脂を用いて得られる硬質な透明封止材を用いると、表示装置の製造段階において、透明基板あるいは封止缶の固定が容易でない場合、あるいは十分に固定されない場合があり、素子の封止が不十分となる場合がある。

【0004】

【特許文献1】特開平9-35868号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明は、柔軟性に優れ、有機EL素子を十分に封止することができ、有機ELディスプレイとした場合、ダークスポットの発生を抑制することができ、それによる画像の視認性を高くすることができる有機EL用透明封止材を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明は以下に示される。

1. 基板と、陽極層と、発光層と、陰極層と、を順次含む発光素子、及び、該発光素子の発光面側に配設される封止部材を備えるエレクトロルミネッセンスディスプレイパネルに用いられる有機EL用透明封止材であって、柔軟性重合体組成物から形成され、且つ、上記発光素子の発光面と上記封止部材との間に配設されることを特徴とする有機EL用透明封止材。

2. 本有機EL用透明封止材を厚さ0.5mmとした場合、その全光線透過率は90%以上である上記1に記載の有機EL用透明封止材。

3. 上記柔軟性重合体組成物はエラストマー組成物である上記1又は2に記載の有機EL用透明封止材。

4. 上記柔軟性重合体組成物は、ジエン系重合体、オレフィン系重合体、アクリル系重合体、ウレタン系重合体、ポリアミド系重合体、ポリエステル系重合体、塩化ビニル系重合体、フッ素系重合体及びシリコン系重合体から選ばれる少なくとも1種の重合体を含む上記1乃至3のいずれかに記載の有機EL用透明封止材。

5. 上記ジエン系重合体は、スチレン・ブタジエン共重合体及びその水素化物（水素添加重合体）、スチレン・イソプレン共重合体及びその水素化物、ブタジエンブロック共重合体及びその水素化物、スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体及びその水素化物、並びに、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体及びその水素化物から選ばれる少なくとも1種である上記4に記載の有機EL用透明封止材。

6. 上記ジエン系重合体は、共役ジエン系ブロック重合体の水素化物であり、この水素化物は、ビニル結合含量が25%未満であるブタジエン重合体ブロック（I）と、共役ジエン単位（a1）及び他の単量体単位（a2）の質量比が（a1）／（a2）＝（100～50）／（0～50）であり、ビニル結合含量が25～95%である重合体ブロック（II）とを、それぞれ分子中に少なくとも1つ有する共役ジエン系ブロック重合体中の、オレフィン性不飽和結合が水素化されたものである上記4又は5に記載の有機EL用透明封止材。

7. 上記オレフィン系重合体は、エチレン・ α -オレフィン共重合体、及び、エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体から選ばれる少なくとも1種である上記4に記載の有機EL用透明封止材。

8. 上記エチレン・ α -オレフィン共重合体、及び、上記エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体は、カルボキシ基、ヒドロキシ基、エポキシ基、アミノ基、アルコキシシリル基、スルホン酸基及びニトリル基から選ばれる官能基を有する上記7に記載の有機EL用透明封止材。

9. 上記柔軟性重合体組成物は、金属イオン及び／又は金属化合物を含む上記7又は8に記載の有機EL用透明封止材。

10. 上記柔軟性重合体組成物は、液状物質を含む上記1乃至9のいずれかに記載の有機EL用透明封止材。

11. 上記液状物質の40℃における動粘度が800mm²/s以下である上記10に記載の有機EL用透明封止材。

12. 上記液状物質の含有量は、上記重合体成分の合計100質量部に対して、50～5000質量部である上記10又は11に記載の有機EL用透明封止材。

13. 本有機EL用透明封止材は薄肉体である上記1乃至12のいずれかに記載の有機EL用透明封止材。

【発明の効果】

【0007】

本発明の有機EL用透明封止材は、柔軟性重合体組成物から形成されたものであるため、柔軟性に優れ、発光素子を劣化させることなく十分に封止することができることにより、ダークスポットの発生を抑制することができ、画像の視認性が安定する。

本発明の有機EL用透明封止材は透明性にも優れるため、ELディスプレイパネルを構成する封止部材等の透明部材と密着した場合にも、その透明性が低下することなく、画像の視認性が安定する。

上記柔軟性重合体組成物がエラストマー組成物である場合には、所望の形状の成形体とした場合にも十分な柔軟性を有するため、ELディスプレイパネル内部の空間を隙間なく埋めることができる。

また、上記柔軟性重合体組成物に、ジエン系重合体、オレフィン系重合体、アクリル系重合体、ウレタン系重合体、ポリアミド系重合体、ポリエステル系重合体、塩化ビニル系重合体、フッ素系重合体及びシリコン系重合体から選ばれる重合体を含む場合、更には特定のジエン系重合体、オレフィン系重合体を含む場合には、特に透明性の高い有機EL用透明封止材であるものとすることができる。更に、上記柔軟性重合体組成物に、動粘度が所定の範囲にある液状物質を含む場合には、透明性を低下させず、より柔軟性に優れた

成形体とすることができる。

本発明の有機EL用透明封止材は、薄肉体とすることもでき、このような場合であっても、容易に破断する、容易に傷が付くということがない。

【発明を実施するための最良の形態】

【0008】

以下、本発明を詳しく説明する。

本発明の有機EL用透明封止材は、基板と、陽極層と、発光層と、陰極層と、を順次含む発光素子（有機EL素子）、及び、該発光素子の発光面側に配設される封止部材を備えるELディスプレイパネルに用いられ、柔軟性重合体組成物から形成され、且つ、上記発光素子の発光面と上記封止部材との間に配設されるものである。

【0009】

本発明の有機EL用透明封止材は、以下に説明する柔軟性重合体組成物から形成されるものである。尚、本発明において、「柔軟性重合体組成物」は、以下に説明する重合体と、他の成分とを含むものであってもよいし、重合体のみであってよい。従って、本発明の有機EL用透明封止材は、以下に説明する重合体と、他の成分とを含む柔軟性重合体組成物から形成されるものであってもよいし、重合体のみで構成される柔軟性重合体組成物から形成されるものであってもよい。

上記柔軟性重合体組成物は、柔軟性を有し、透明な成形体を与える重合体を含有することが好ましい。含有される重合体は樹脂であってもよいし、エラストマー（ゴムを含む）であってもよい。更には、樹脂及びエラストマーを組み合わせてもよい。本発明においては、上記柔軟性重合体組成物は、エラストマー組成物であることが好ましい。含有される重合体としては、オレフィン系重合体、ジエン系重合体、アクリル系重合体、ウレタン系重合体、ポリアミド系重合体、ポリエステル系重合体、塩化ビニル系重合体、フッ素系重合体、シリコン系重合体等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。

【0010】

上記ジエン系重合体としては、共役ジエンを用いてなる重合体が好ましく、共役ジエンの単独重合体、共重合体であってもよいし、共役ジエンと他の単量体との共重合体であってもよい。また、単独重合体と共重合体とを組み合わせる用いてもよい。

上記共役ジエンとしては、1, 3-ブタジエン、イソプレン、2, 3-ジメチル-1, 3-ブタジエン、1, 3-ペンタジエン、2-メチル-1, 3-ペンタジエン、1, 3-ヘキサジエン、4, 5-ジエチル-1, 3-オクタジエン、クロロプレン等が挙げられる。これらのうち、1, 3-ブタジエン、イソプレン及び1, 3-ペンタジエンが好ましく、特に1, 3-ブタジエン及びイソプレンが好ましい。尚、上記例示した化合物は、1種単独であるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。

また、共重合体とする場合の他の単量体としては、スチレン、 α -ブチルスチレン、 α -メチルスチレン、 α -クロロスチレン、 p -メチルスチレン、ジビニルベンゼン、N, N-ジエチル- p -アミノスチレン等の芳香族ビニル化合物；（メタ）アクリロニトリル等のシアン化ビニル化合物；ビニルピリジン等の窒素原子含有ビニル化合物等が挙げられる。これらのうち、スチレン及び α -メチルスチレンが好ましい。尚、上記例示した化合物は、1種単独であるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。上記ジエン系重合体が共役ジエンと他の単量体との共重合体である場合、共役ジエン単位は、ランダム、テーパー（分子鎖に沿って単量体が増加又は減少するもの）及び一部ブロックから選ばれる分布であってもよい。

【0011】

上記ジエン系重合体としては、ポリブタジエン、ポリイソプレン、スチレン・ブタジエン共重合体、スチレン・イソプレン共重合体、イソブチレン・イソプレン重合体、アクリロニトリル・ブタジエン共重合体等が挙げられるが、スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体等の共役ジエン系ブロック共重合体であってもよい。この共役ジエン系ブロック共重合体は、共役ジエンの共

重合体であってもよいし、上記のように共役ジエンと、芳香族ビニル化合物等の1種以上の他の単量体との共重合体であってもよい。従って、このブロック共重合体のブロック構造としては、 $(A-B)_m A$ 、 $(B-A)_m B$ 、 $(A-B-A)_m$ 、 $(B-A-B)_m$ 等が挙げられ、更に、 $(A-B)_m X$ 、 $(B-A)_m X$ 、 $(A-B-A)_m X$ 、 $(B-A-B)_m X$ 等のように、カップリング剤残基Xを介して重合体分子鎖が延長又は分岐されたものでもよい。各一般式において、「A」は共役ジエン単位を主体とするブロック、「B」は他の共役ジエン単位又は他の単量体単位を主体とするブロック、mは1以上の整数である。尚、本発明に関わるジエン系重合体は、上記重合体の水素化物（水素添加重合体）であってもよい。水素化物を用いる場合のその水素添加率は、好ましくは80%以上、より好ましくは85%以上、特に好ましくは90%以上である。水素添加率が高いほど、成形体とした場合の耐光性、形状保持性及び力学的性質を向上させることができる。

【0012】

本発明に関わる上記ジエン系重合体としては、共役ジエン系ブロック重合体の水素化物を用いることが好ましい。この水素化物とするための共役ジエン系ブロック重合体としては、ビニル結合含量が25%未満であるブタジエン重合体ブロック(I)と、共役ジエン単位(a1)及び他の単量体単位(a2)の質量比が $(a1)/(a2) = (100 \sim 50)/(0 \sim 50)$ であり、ビニル結合含量が25~95%である重合体ブロック(II)とを、それぞれ分子中に少なくとも1つ有するジエン系ブロック重合体(以下、「重合体(P)」という。)が好ましい。

【0013】

上記ブタジエン重合体ブロック(I)において、ビニル結合(1, 2-ビニル結合)の含量は、好ましくは25%未満、より好ましくは5~20%、更に好ましくは7~19%である。従って、上記ブタジエン重合体ブロック(I)は、水素添加によりエチレン・ブテン共重合体に類似した構造を示す結晶性のブロックとなる。ビニル結合含量を上記範囲とすることにより、成形体の力学的性質及び形状保持性を向上させることができる。

【0014】

また、上記重合体ブロック(II)は、共役ジエン単位のみからなるブロックであってもよいし、共役ジエン単位(a1)と他の単量体単位(a2)とからなるブロックであってもよい。共役ジエン単位(a1)及び他の単量体単位(a2)の質量比 $(a1)/(a2)$ は、好ましくは $(100 \sim 50)/(0 \sim 50)$ であり、より好ましくは $(100 \sim 70)/(0 \sim 30)$ 、更に好ましくは $(100 \sim 90)/(0 \sim 10)$ である。このような範囲とすることにより、粘弾性に優れた成形体を得ることができる。

尚、上記重合体ブロック(II)において、ビニル結合(1, 2-ビニル結合及び3, 4-ビニル結合)の含量は、好ましくは25~95%であり、より好ましくは25~90%、更に好ましくは30~85%である。

【0015】

従って、上記重合体(P)としては、ブタジエン重合体ブロック(I)を「 A^1 」、重合体ブロック(II)を「 B^1 」とした場合、 $(A^1-B^1)_{m1}$ 、 $(A^1-B^1)_{m2}-A^1$ 、 $(B^1-A^1)_{m3}-B^1$ 等で表されるものを用いることができる。各一般式において、 $m1 \sim m3$ は1以上の整数を示す。

また、上記重合体(P)は、トリブロック以上のブロックを有する共重合体であると、水素化物とした場合に、更に形状保持性及び力学的性質により優れる成形体を得ることができる。従って、上記一般式において、 $m1$ は、2以上の整数であることが好ましい。

【0016】

尚、上記重合体(P)は、上記ブタジエン重合体ブロック(I)及び上記重合体ブロック(II)をそれぞれ分子中に少なくとも1つ有していればよく、これら以外に、他のブロック、例えば、共役ジエン単位以外の他の単量体単位からなるブロックを有する重合体であってもよい。

【0017】

上記重合体(P)を構成する上記ブタジエン重合体ブロック(I)及び上記重合体ブ

ック(II)の含有割合(I)/(II)は、好ましくは(5~60)/(95~40)、より好ましくは(7~55)/(93~45)、更に好ましくは(7~50)/(93~50)である。上記各ブロックの含有割合を上記範囲とすることにより、水素化物とした場合に、形状保持性及び力学的性質に特に優れた成形体を得ることができる。

【0018】

尚、上記重合体(P)においても、 $(A^1-B^1)_nX$ 、 $(B^1-A^1)_nX$ 、 $(A^1-B^1-A^1)_nX$ 、 $(B^1-A^1-B^1)_nX$ 等のように、カップリング剤残基Xを介して重合体分子鎖が延長又は分岐されたものでもよい。各一般式において、nは2以上の整数を示す。また、上記各一般式において、nが3以上のとき、水素化物とした場合に、形状保持性、ホットメルト粘・接着性に優れた成形体を得ることができる。

上記カップリング剤としては、1, 2-ジプロモエタン、メチルジクロロシラン、トリクロロシラン、メチルトリクロロシラン、テトラクロロシラン、テトラメトキシシラン、ジビニルベンゼン、アジピン酸ジエチル、アジピン酸ジオクチル、ベンゼン-1, 2, 4-トリイソシアナート、トリレンジイソシアナート、エポキシ化1, 2-ポリブタジエン、エポキシ化アマニ油、テトラクロロゲルマニウム、テトラクロロスズ、ブチルトリクロロスズ、ブチルトリクロロシラン、ジメチルクロロシラン、1, 4-クロロメチルベンゼン、ビス(トリクロロシリル)エタン等が挙げられる。

【0019】

上記重合体(P)の水素化(水素添加)は、ブロック中のオレフィン性不飽和結合に対して行い、水素添加率を、好ましくは80%以上、より好ましくは85%以上、特に好ましくは90%以上と高くすることで、得られる水素化物により成形体とした場合の耐光性、形状保持性及び力学的性質を向上させることができる。尚、上記重合体(P)の水素化は、特開平2-133406号公報、特開平3-128957号公報、特開平5-170844号公報等に開示される方法等によって行うことができる。

【0020】

また、上記イソブチレン・イソプレン共重合体は、一般に「ブチルゴム」として用いられるものであるが、イソブチレン及びイソプレンと、更に他の単量体、例えば極性基を有する化合物(以下、「極性基含有化合物」ともいう。)との共重合体であってもよい。更にはこの極性基含有化合物等による部分架橋共重合体等であってもよい。

【0021】

上記極性基含有化合物としては、ヒドロキシル基、エポキシ基、アミノ基、カルボキシル基、酸無水物基、アルコキシシリル基、ニトリル基等から選ばれる少なくとも1種を有する化合物を用いることができる。

また、上記部分架橋共重合体は、これらの極性基含有化合物に多官能性不飽和結合を有する化合物を共重合することにより得られるが、この化合物としては、多価アリル化合物、多価(メタ)アクリレート化合物、ジビニル化合物、ビスマレイミド化合物、ジオキシム化合物等が挙げられる。

【0022】

上記ブチルゴムとしては、イソブチレン・イソプレン共重合体等がハロゲン化された塩素化イソブチレン・イソプレン共重合体、臭素化イソブチレン・イソプレン共重合体等であってもよい。

【0023】

上記オレフィン系重合体としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン・ α -オレフィン共重合体、エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体等が挙げられる。但し、上記エチレン・ α -オレフィン共重合体及びエチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体における α -オレフィンは、エチレンを除く α -オレフィンであるものとする。この α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、3-メチル-1-ブテン、1-ヘキセン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン等が挙げられ、炭素数が3~12である α -オレフィンが好ましく、特に、プロピレン及び1-ブテンが

好ましい。尚、上記例示した α -オレフィンは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

上記エチレン・ α -オレフィン共重合体としては、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・1-ブテン共重合体、エチレン・1-ペンテン共重合体、エチレン・3-メチル-1-ブテン共重合体、エチレン・1-ヘキセン共重合体、エチレン・3-メチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・4-メチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・3-エチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・1-オクテン共重合体、エチレン・1-デセン共重合体、エチレン・1-ウンデセン共重合体等が挙げられる。これらのうち、エチレン・プロピレン共重合体及びエチレン・1-ブテン共重合体が好ましい。尚、上記例示したエチレン・ α -オレフィン共重合体は、1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

【0024】

また、エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体とする場合の上記非共役ジエンとしては、1, 4-ペンタジエン、1, 4-ヘキサジエン、1, 5-ヘキサジエン、1, 7-オクタジエン、1, 9-デカジエン、3, 6-ジメチル-1, 7-オクタジエン、4, 5-ジメチル-1, 7-オクタジエン、5-メチル-1, 8-ノナジエン、ジシクロペンタジエン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-ビニル-2-ノルボルネン、2, 5-ノルボルナジエン等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

上記エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体としては、エチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエン共重合体、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合体、エチレン・1-ブテン・ジシクロペンタジエン共重合体、エチレン・1-ブテン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合体等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

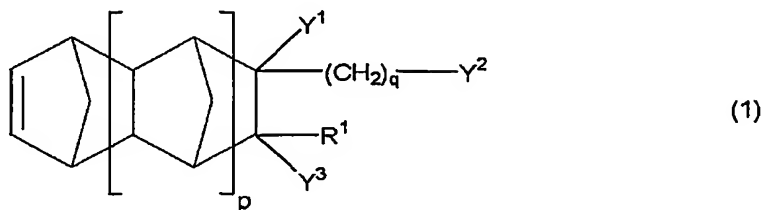
【0025】

尚、上記エチレン・ α -オレフィン共重合体及び上記エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体は、各重合体中に、他の単量体 (a) からなる単量体単位を含有する重合体であってもよい。他の単量体 (a) としては、カルボキシル基、ヒドロキシル基、エポキシ基、アミノ基、アルコキシシリル基、スルホン酸基、ニトリル基等の官能基を有する不飽和化合物が好ましい。このような不飽和化合物は、1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。また、上記不飽和化合物の使用量は、全単量体に対して、好ましくは0.01~10質量%、より好ましくは0.1~5質量%である。

【0026】

カルボキシル基を有する不飽和化合物としては、無水マレイン酸、(メタ)アクリル酸、下記一般式(1)で表される環式化合物等を用いることができる。

【化1】



(上記一般式(1)において、 R^1 は、水素原子又は炭素数1~10の炭化水素基であり、 Y^1 、 Y^2 及び Y^3 は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数1~10の炭化水素基又は $-COOH$ であり、 Y^1 、 Y^2 及び Y^3 のうち少なくとも1つは $-COOH$ であり、また、 Y^1 、 Y^2 及び Y^3 のうち2つ以上が $-COOH$ である場合は、それらは互いに連結して形成された酸無水物 ($-CO-(O)-CO-$) であってもよい。 p は0~2の整数であり、 q は0~5の整数である。)

【0027】

上記環式化合物としては、5, 6-ジメチル-5, 6-ジカルボキシ-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、5, 6-ジエチル-5, 6-ジカルボキシ-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、5, 6-ジメチル-5, 6-ビス(カルボキシメチル)-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、5, 6-ジエチル-5, 6-ビス(カルボキシメチル)-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、5-メチル-5-カルボキシ-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、5-エチル-5-カルボキシ-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、5-カルボキシ-5-カルボキシメチル-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、5-メチル-5-カルボキシメチル-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、5-エチル-5-カルボキシメチル-ビシクロ〔2. 2. 1〕-2-ヘプテン、8, 9-ジメチル-8, 9-ジカルボキシ-テトラシクロ〔4. 4. 0. 1². 5. 1⁷. 1⁰〕-3-ドデセン、8, 9-ジエチル-8, 9-ジカルボキシ-テトラシクロ〔4. 4. 0. 1². 5. 1⁷. 1⁰〕-3-ドデセン、8-メチル-8-カルボキシ-テトラシクロ〔4. 4. 0. 1². 5. 1⁷. 1⁰〕-3-ドデセン、8-エチル-8-カルボキシ-テトラシクロ〔4. 4. 0. 1². 5. 1⁷. 1⁰〕-3-ドデセン等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

【0028】

上記一般式(1)で表される化合物を用いる場合のその使用量は、全単量体に対して、好ましくは0.01~15質量%、より好ましくは0.1~10質量%である。

上記一般式(1)で表される化合物を共重合させたエチレン・ α -オレフィン共重合体又はエチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体は、ランダム共重合体であることが好ましい。また、共重合により得られたランダム共重合体の、GPCによるポリスチレン換算の重量平均分子量Mwは、好ましくは1,000~3,000,000、より好ましくは3,000~1,000,000、更に好ましくは5,000~700,000である。

【0029】

本発明に関わるオレフィン系重合体としては、上記例示したエチレン・ α -オレフィン共重合体及びエチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体をそれぞれ1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

【0030】

上記アクリル系重合体としては、アクリル酸アルキルエステルを含む単量体から得られる重合体等が挙げられる。

上記アクリル酸アルキルエステルとしては、メチルアクリレート、エチルアクリレート、n-プロピルアクリレート、n-ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、n-ペンチルアクリレート、イソアミルアクリレート、n-ヘキシルアクリレート、2-メチルペンチルアクリレート、n-オクチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、n-デシルアクリレート、n-ドデシルアクリレート、n-オクタデシルアクリレート、シアノメチルアクリレート、1-シアノエチルアクリレート、2-シアノエチルアクリレート、1-シアノプロピルアクリレート、2-シアノプロピルアクリレート、3-シアノプロピルアクリレート、4-シアノブチルアクリレート、6-シアノヘキシルアクリレート、2-エチル-6-シアノヘキシルアクリレート、8-シアノオクチルアクリレート等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

【0031】

上記アクリル系重合体は、アクリル酸アルキルエステルと他の単量体との共重合体であれば、樹脂でもゴムでもよく、例えば、アクリルゴムである場合には、アクリル酸アルコキシアルキルエステル、エチレン性不飽和化合物、架橋性化合物等を他の単量体として用いることができる。

上記アクリル酸アルコキシアルキルエステルとしては、2-メトキシエチルアクリレート、2-エトキシエチルアクリレート、2-(n-プロポキシ)エチルアクリレート、2

ー (n-ブトキシ) エチルアクリレート、3-メトキシプロピルアクリレート、3-エトキシプロピルアクリレート、2- (n-プロポキシ) プロピルアクリレート、2- (n-ブトキシ) プロピルアクリレート等が挙げられる。

【0032】

上記エチレン性不飽和化合物としては、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、2-ペンテン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸等のカルボキシル基を有する化合物；1, 1-ジヒドロペルフルオロエチル (メタ) アクリレート、1, 1-ジヒドロペルフルオロプロピル (メタ) アクリレート、1, 1, 5-トリヒドロペルフルオロヘキシル (メタ) アクリレート、1, 1, 2, 2-テトラヒドロペルフルオロプロピル (メタ) アクリレート、1, 1, 7-トリヒドロペルフルオロヘプチル (メタ) アクリレート、1, 1-ジヒドロペルフルオロオクチル (メタ) アクリレート、1, 1-ジヒドロペルフルオロデシル (メタ) アクリレート等の含フッ素アクリル酸エステル；1-ヒドロキシプロピル (メタ) アクリレート、2-ヒドロキシプロピル (メタ) アクリレート、ヒドロキシエチル (メタ) アクリレート等のヒドロキシル基を有する化合物；ジエチルアミノエチル (メタ) アクリレート、ジブチルアミノエチル (メタ) アクリレート等の第3級アミノ基を有する単量体；メチルメタクリレート、オクチルメタクリレート等のメタクリル酸エステル；メチルビニルケトン等のアルキルビニルケトン；ビニルエチルエーテル、アリルメチルエーテル等のビニル及びアリルエーテル；スチレン、 α -メチルスチレン、クロロスチレン、ビニルトルエン等のビニル芳香族化合物；アクリロニトリル、メタアクリロニトリル等のシアン化ビニル化合物；エチレン、プロピレン、ブテン、塩化ビニル、塩化ビニリデン、フッ化ビニル、フッ化ビニリデン、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、アルキルフマレート等が挙げられる。

【0033】

上記架橋性化合物としては、ジエン系化合物、ジヒドロジシクロペンタジエニル基を有する (メタ) アクリル酸エステル、エポキシ基を有するエチレン性不飽和化合物、活性ハロゲン含有エチレン性不飽和化合物、カルボキシル基を有するエチレン性不飽和化合物、活性水素基を有するエチレン性不飽和化合物等が挙げられる。

【0034】

上記ウレタン系重合体としては、有機ジイソシアネート、高分子ジオール及び鎖伸長剤を反応させて得られるもの等が挙げられる。

上記有機ジイソシアネートとしては、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、トリレンジイソシアネート、1, 5-ナフチレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、フェニレンジイソシアネート、3, 3'-ジクロロ-4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート等の芳香族ジイソシアネート類；ヘキサメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、4, 4'-ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、水添キシリレンジイソシアネート等の脂肪族又は脂環式ジイソシアネート類等が挙げられる。これらの有機ジイソシアネートは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

【0035】

また、上記高分子ジオールとしては、ポリエステルジオール、ポリエーテルジオール、ポリカーボネートジオール、ポリエステルポリカーボネートジオール、ポリエステルポリエーテルジオール等が挙げられる。

これらのうち、ポリエステルジオールとしては、脂肪族ジオールと脂肪族ジカルボン酸又はこれらのエステル形成性誘導体の反応により得られた脂肪族ポリエステルジオール、脂肪族ジオールと芳香族ジカルボン酸又はこれらのエステル形成性誘導体の反応により得られた芳香族ポリエステルジオール等が挙げられる。また、ポリエーテルジオールとしては、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール又はこれらのブロック共重合体等が挙げられる。更に、ポリカーボネートジオールとしては、脂肪族ジオールとカーボネート化合物との反応により得られたポリカーボネートジオール、ビスフェノールA等の芳香族ジオールとカーボネート化合物との反応により得ら

れたポリカーボネートジオール等が挙げられる。これらの高分子ジオールは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。

【0036】

上記鎖伸長剤としては、従来から公知の鎖伸長剤を用いることができ、イソシアネート基と反応し得る活性水素原子を分子中に2個以上有する分子量300以下の低分子化合物、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサジオール、1,4-ビス(β-ヒドロキシエトキシ)ベンゼン、1,4-シクロヘキサジオール、ビス(β-ヒドロキシエチル)テレフタレート、キシリレングリコール等のジオール類；ヒドラジン、エチレンジアミン、プロピレンジアミン、キシリレンジアミン、イソホロレンジアミン、ピペラジン及びその誘導体、フェニレンジアミン、トリレンジアミン、キシレンジアミン、アジピン酸ジヒドラジン、イソフタル酸ジヒドラジン等のジアミン類、アミノエチルアルコール、アミノプロピルアルコール等のアミノアルコール類等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。

【0037】

上記ポリアミド系重合体としては、ポリアミドからなるハードセグメントと、ポリエステル、ポリエーテル、ポリエステル・ポリエーテル等からなるソフトセグメントとから構成される共重合体等が挙げられる。

【0038】

上記ポリアミドセグメントとしては、ω-アミノカプロン酸、ω-アミノエナン酸、ω-アミノカプリル酸、ω-アミノベルゴン酸、ω-アミノカプリン酸、11-アミノウンデカン酸、12-アミノドデカン酸等の炭素数が6以上のアミノカルボン酸から誘導されるセグメント；カプロラクタム、ラウリロラクタム等のラクタムから誘導されるセグメント；エチレンジアミン、1,2-プロピレンジアミン、1,3-プロピレンジアミン、1,4-ブタンジアミン、1,5-ペンタンジアミン、3-メチル-1,5-ペンタンジアミン、1,6-ヘキサレンジアミン、1,7-ヘプタンジアミン、1,8-オクタンジアミン、2-メチル-1,8-オクタンジアミン、1,9-ノナンジアミン、1,10-デカンジアミン、1,11-ウンデカンジアミン、1,12-ドデカンジアミン、シクロヘキサレンジアミン等のジアミン成分と、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸、ジフェニル-4,4'-ジカルボン酸、ジフェノキシエタンジカルボン酸等のジカルボン酸成分とから誘導されるセグメント等が挙げられる。

【0039】

上記ポリエステルセグメントとしては、ω-オキシカプロン酸等のヒドロキシカルボン酸から誘導されるセグメント；ε-カプロラク톤等のラクトンから誘導されるセグメント；グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸、ジフェニル-4,4'-ジカルボン酸、ジフェノキシエタンジカルボン酸等のジカルボン酸成分と、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,5-ペンタンジオール、3-メチル-1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、1,7-ヘプタンジオール、1,8-オクタンジオール、2-メチル-1,8-オクタンジオール、1,9-ノナンジオール、1,10-デカンジオール、シクロヘキサジメタノール、シクロヘキサジオール等のジオール成分とから誘導されるセグメント等が挙げられる。

【0040】

また、上記ポリエーテルセグメントとしては、ポリメチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリヘキサメ

チレングリコール等のセグメント等が挙げられる。

【0041】

更に、上記ポリエステルポリエーテルセグメントとしては、上記したポリエステルセグメントのジカルボン酸成分と、ポリメチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリヘキサメチレングリコール等のジオール成分とから誘導されるセグメント等が挙げられる。

【0042】

上記ポリエステル系重合体としては、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステルをハードセグメントとし、ポリテトラメチレングリコールエーテル (PTMG)、PTMEGT (PTMGとテレフタル酸との縮合物) 等のポリエーテルをソフトセグメントとするポリエステル・ポリエーテル型重合体；ポリエステルをハードセグメントとし、ポリカプロラクトン等の脂肪族ポリエステルをソフトセグメントとするポリエステル・ポリエステル型重合体等が挙げられる。

【0043】

上記フッ素系重合体としては、フッ化ビニリデンを含む単量体から得られる重合体等が挙げられる。他の単量体としては、パーフルオロビニルエーテル、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、クロロトリフルオロエチレン、エチレン、プロピレン、架橋性化合物等が挙げられる。

【0044】

上記例示した重合体のうち、柔軟性重合体組成物に含有される重合体としては、ジエン系重合体及びオレフィン系重合体が好ましい。これらは、上記のような特定の構造とすることによって、透明性を有する成形体を形成することができ、例えば、透明なガラス、プラスチック等に密着させた場合であっても、透明性の低下を招くことがない。

尚、本発明に関わる柔軟性重合体組成物に含有される重合体は、上記例示した重合体に加え、エチレン・酢酸ビニル共重合体、スチレン系重合体、ポリカーボネート、ポリアセタール、エポキシ系重合体等の重合体を任意に組み合わせて用いることもできる。

【0045】

本発明に関わる柔軟性重合体組成物は、上記例示した重合体のみからなるものであってもよいし、成形体の透明性を損なわない範囲で添加剤等を含有するものであってもよい。添加剤としては、軟化剤、可塑剤、滑剤、架橋剤、架橋助剤、酸化防止剤、老化防止剤、熱安定剤、難燃剤、防菌・防かび剤、耐候剤、紫外線吸収剤、粘着付与剤、造核剤、顔料、染料、有機フィラー、無機フィラー、シランカップリング剤、チタンカップリング剤等が挙げられる。

【0046】

本発明の有機E L用透明封止材は、透明性を有するのみならず、柔軟性をも有するが、上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体を単独で有機E L用透明封止材とする場合と、上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体の少なくとも一部を架橋させて有機E L用透明封止材とする場合とがあり、後者の場合には架橋構造を有することで、耐熱性がより向上する。

【0047】

上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体の少なくとも一部を架橋させて本発明の有機E L用透明封止材とする場合には、架橋剤が用いられる。例えば、有機過酸化物、硫黄、硫黄含有化合物等が挙げられる。

上記有機過酸化物としては、 t -ブチルヒドロパーオキシド、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルヒドロパーオキシド、 p -メンタンヒドロパーオキシド、クメンヒドロパーオキシド、ジイソプロピルベンゼンヒドロパーオキシド、2, 5-ジメチルヘキサノ-2, 5-ジヒドロパーオキシド、1, 1-ジ- t -ブチルパーオキシ-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、ジ- t -ブチルパーオキシド、 t -ブチルクミルパーオキシド、ジクミルパーオキシド、1, 1-ビス(t -ブチルパーオキシ)シクロドデカン、2, 2-ビス(t -ブチルパーオキシ)オクタン、1, 1-ジ-

t-ブチルパーオキシシクロヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ- (t-ブチルパーオキシ) ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ- (t-ブチルパーオキシ) ヘキシン、1, 3-ビス (t-ブチルパーオキシ-イソプロピル) ベンゼン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ- (ベンゾイルパーオキシ) ヘキサン、1, 1-ビス (t-ブチルパーオキシ) -3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、n-ブチル-4, 4-ビス (t-ブチルパーオキシ) バレレート、ペイゾイルパーオキサイド、m-トルイルパーオキサイド、p-クロロベンゾイルパーオキサイド、2, 4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド、t-ブチルパーオキシイソブチレート、t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ブチルパーオキシベンゾエート、t-ブチルパーオキシ-イソプロピルカーボナート、t-ブチルパーオキシアリルカーボナート等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

【0048】

また、上記一般式 (1) で表される環式化合物を用いて得られた共重合体に化学的架橋構造又はそれと類似した拘束点を有する構造を形成させる場合には、金属イオン、金属化合物等を用いることができる。この金属イオンは、以下に例示する元素のイオン及びこの元素を含む金属化合物のイオンも意味する。この金属としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、アルミニウム、マグネシウム、カルシウム、バリウム、セシウム、ストロンチウム、ルビジウム、チタン、亜鉛、銅、鉄、錫、鉛、ジルコニウム等周期表第Ⅰ～ⅦⅠⅠ族の元素等が挙げられる。これらの元素を含むイオンは、上記で得られたランダム共重合体中の官能基に対するイオン結合あるいは静電的な結合により共重合体どうしの間に架橋構造を形成することもできる。尚、上記金属化合物のイオンとするための物質としては、各金属の酸化物、水酸化物、塩、錯体 (金属カルボキシレート、金属アセチルアセトナート等)、金属元素を含む有機化合物 (炭素数が1～8から選ばれ、且つ、金属元素を含むアルコキシド等) 等が挙げられる。

【0049】

上記イオンとするための物質の使用量は、上記一般式 (1) で表される環式化合物を用いて得られた共重合体を構成する環式化合物より形成された単位 of 1 当量に対し、好ましくは0.01～50当量、より好ましくは0.1～10当量、特に好ましくは0.2～5当量である。上記イオンとするための物質の使用量が少なすぎると、得られる成形体は、架橋密度又は拘束点密度が低く、機械的強度及び耐熱性に劣る傾向がある。一方、使用量が多すぎると、得られる成形体は、架橋密度又は拘束点密度が高くなり、硬度が高すぎて脆いものとなることがある。

【0050】

更に、上記一般式 (1) で表される環式化合物を用いて得られた共重合体に対する、上記イオンとするための物質の混和性及び得られる成形体の耐熱性を向上させるために、上記イオンとするための物質以外に、活性剤としてカルボン酸等の有機酸の金属塩を添加してもよい。このカルボン酸の金属塩としては、炭素数3～23の1価のカルボン酸の金属塩を用いることが好ましい。

また、活性剤として用いられる金属塩における金属元素としては、上記イオンとするための物質を構成する金属元素から選択すればよいが、上記イオンとするための物質を構成する金属元素と同種の元素を含む金属塩を用いることが好ましい。

【0051】

本発明においては、より柔軟性が向上した成形体とするために、上記柔軟性重合体組成物に、液状材料を含むことが好ましい。この液状材料としては、ダークスポットの発生を抑制するために、40℃における動粘度が好ましくは800 mm²/s (1 cm²/s = 1 St) 以下、より好ましくは600 mm²/s 以下、更に好ましくは0.1～500 mm²/s であるものであれば、上記添加剤成分等をそのまま用いることができる。即ち、上記液状材料としては、動粘度が上記条件を満たす物質であれば、軟化剤、可塑剤、滑剤、液状重合体等を好適に用いることができる。

【0052】

軟化剤としては、パラフィン系油等の天然又は合成の石油系軟化剤、エチレン・ α -オレフィン系オリゴマー、ギルソナイト等の鉱物油系軟化剤、オレイン酸、リシノール酸等の脂肪酸等が挙げられる。

可塑剤としては、フタル酸誘導体、イソフタル酸誘導体、テトラヒドロフタル酸誘導体、アジピン酸誘導体、セバシン酸誘導体、フマル酸誘導体、クエン酸誘導体、アゼライン酸誘導体、リン酸誘導体、マレイン酸誘導体等の各種脂肪酸の誘導体等が挙げられる。

滑剤としては、パラフィン系滑剤、炭化水素系滑剤、金属セッケン等が挙げられる。

また、液状重合体としては、液状ポリブタジエン、液状スチレン・ブタジエンゴム等の液状ゴム、ポリイソブチレン、シリコンオイル等が挙げられる。

上記例示した液状材料は、1種単独であるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。

【0053】

上記液状材料を用いる場合のその使用量は、上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体の全量を100質量部とした場合、好ましくは50～5000質量部、より好ましくは50～4000質量部、更に好ましくは50～3000質量部、特に好ましくは70～2000質量部である。上記液状材料の配合量が50質量部未満であると、所望の弾性率を有する成形体が得られない場合がある。一方、上記液状材料の配合量が5000質量部を超えると、成形体から液状材料がにじみ出ることがあり、透明性を維持することが困難になる場合がある。

【0054】

上記柔軟性重合体組成物を用い、射出成形、押出成形、中空成形、圧縮成型、真空成形、積層成形、カレンダー成形、キャスト成形、コーター成形、ロール成形、Tダイコーター、Tダイ押出成形、注入成形等の公知の方法によって、所望の形状を有する成形体を得ることができる。得られる成形体は、透明性に優れ、厚さ0.5mmとした場合、そのヘイズは、好ましくは5%未満、より好ましくは4.5%以下、更に好ましくは4%以下であり、また、その全光線透過率は、好ましくは90%以上、より好ましくは91%以上、更に好ましくは92%以上である。上記全光線透過率は、広い温度範囲で得ることができ、例えば、 $-100 \sim 110^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $-50 \sim 100^{\circ}\text{C}$ で得ることができる。尚、ヘイズ及び全光線透過率の測定方法は、後述する。

【0055】

また、得られる成形体は、優れた強度及び柔軟性を有し、 30°C 、1Hzの条件下、動的粘弾性測定により得られる剪断貯蔵弾性率(G')は、好ましくは $1 \times 10^{10} \text{ dyn/cm}^2$ 以下、より好ましくは $1 \times 10^8 \text{ dyn/cm}^2$ 以下、更に好ましくは $1 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$ 以下であり、通常、 1 dyn/cm^2 以上である。尚、剪断貯蔵弾性率の測定方法は、後述する。

また、得られる成形体は、耐熱性にも優れており、好ましくは $-80 \sim 110^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $-50 \sim 100^{\circ}\text{C}$ において、柔軟性、透明性及び形状保持性を併せ持つ。

【0056】

本発明の有機EL素子用透明封止材は、上記のような性質を有するため、少なくとも発光素子全体を封止し、更に発光素子を取り巻く空間部を埋めるのに好適である。

本発明の有機EL素子用透明封止材の形状は限定されるものではなく、空間部の形状に合わせたものとしてすることができる。また、薄肉部を有する薄肉体とすることもでき、板状体、凹状体等とすることができる。その場合の最薄部の厚さは、好ましくは $2000 \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ とすることができる。

【0057】

本発明の有機EL用透明封止材は、例えば、図1に示すELディスプレイパネル1の所定の位置に配設することができる。即ち、図1に示す態様は、有機EL用透明封止材2が、図3に示す発光素子3（図1における構成部材31～34）の発光面（図1における上方）、及び、封止部材4の間の空間部を埋めるように、その両方に密着させて配設された説明図である。本発明の有機EL素子用透明封止材は、上記のように、柔軟性に優れるの

で、発光素子を十分に封止するように密着させることができ、このことより、画像の視認性が向上する。

【0058】

また、本発明の有機EL用透明封止材は、図2に示す形態で用いることもできる。即ち、発光素子（図1における構成部材31～34）の発光面（図2における上方）、及び、封止部材4（図2における形状のものは、「封止缶」といわれることもある。）の間の空間部を埋めるように配設することもできる。

本発明の有機EL用透明封止材の使用方法は、図1及び図2のような態様に限定されないが、どのような配設方法であっても、上記説明した性質を長時間に渡って維持し続けるものである。即ち、本発明の有機EL用透明封止材は、使用時間とともに劣化することなく、更に、発光素子を損傷させたり、ダークスポットを発生させたりすることも少ない。

【0059】

上記封止部材（図1及び図2における番号4）は、ディスプレイパネルの表示内容の視認性を大きく阻害することがないものであれば、ガラス、樹脂等からなるものを用いることができる。

ガラスとしては、ホウケイ酸ガラス、アルミノケイ酸ガラス、アルミノホウケイ酸ガラス、シリカガラス、低アルカリガラス、ソーダ石灰ガラス等が挙げられる。

また、樹脂としては、ポリカーボネート系樹脂、ポリアセタール系樹脂、1, 2-ポリブタジエン樹脂、好ましくは3質量%以上の酢酸ビニル単位を含有するエチレン・酢酸ビニル共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン等のオレフィン系樹脂、スチレン系樹脂、アクリル系樹脂、ビニルエステル系樹脂、飽和ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリフッ化ビニリデン等のフッ素樹脂、ウレタン系樹脂、エポキシ系樹脂、不飽和ポリエステル系樹脂、シリコン系樹脂等が挙げられる。

上記封止部材の形状は、図1のように板状であってもよいし、図2のように発光部材等を覆う蓋型形状であってもよい。

【実施例】

【0060】

以下、本発明について、実施例を挙げて具体的に説明する。尚、本発明は、これらの実施例に何ら制約されるものではない。また、実施例中の「%」及び「部」は、特に断らない限り質量基準である。

1. 柔軟性重合体組成物の調製

以下に示す方法で得た重合体及び液状物質を用いて表1に記載の割合で混合し、柔軟性重合体組成物(i)～(vii)を調製した。

1-1. 重合体

(1) ブタジエンブロック重合体の水素化物(A1)

窒素置換された内容積50リットルの反応容器に、シクロヘキサン25kg、テトラヒドロフラン1g、1, 3-ブタジエン1500g及びn-ブチルリチウム3.9gを投入し、70℃で断熱重合を行った。反応完結後、反応溶液の温度を40℃とし、テトラヒドロフラン100g及び1, 3-ブタジエン3500gを添加して更に断熱重合した。30分後、メチルジクロロシラン2.7gを添加し、15分反応を行い、反応を完結させた。

次に、水素ガスを0.4MPa-Gの圧力で供給し、反応溶液を攪拌しながら、リピングアニオンとして生きているポリマー末端リチウムと20分間反応させ、水素化リチウムとした。その後、反応溶液を90℃としてテトラクロロシラン0.8gを更に添加し、約20分間攪拌した。次いで、チタノセン化合物を主体とした水素添加触媒を反応溶液に加え、水素ガスの供給圧を0.8MPaとして2時間水素添加反応を行い、水素の吸収が終了した時点で、反応溶液を常温、常圧に戻して反応容器より抜き出した。その後、反応溶液を水中に攪拌投入して溶媒を水蒸気蒸留により除去することによって、水素添加ブロック重合体A1を得た。得られた水素添加ブロック重合体A1の水素添加率は99%、重量平均分子量は34万、水素添加前ポリマーの1段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は15%、水素添加前ポリマーの2段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結

合含量は49%であった。

【0061】

(2) ブタジエンブロック重合体の水素化物 (A2)

窒素置換された内容積50リットルの反応容器に、シクロヘキサン25kg、テトラヒドロフラン1g、1,3-ブタジエン1500g及びn-ブチルリチウム4.1gを投入し、70℃で断熱重合を行った。反応完結後、反応溶液の温度を35℃とし、テトラヒドロフラン27g及び1,3-ブタジエン3500gを添加して更に断熱重合した。30分後、メチルジクロロシラン2.9gを添加し、15分反応を行い、反応を完結させた。

次に、水素ガスを0.4MPa-Gの圧力で供給し、反応溶液を攪拌しながら、リビングアニオンとして生きているポリマー末端リチウムと20分間反応させ、水素化リチウムとした。その後、反応溶液を90℃としてテトラクロロシラン0.9gを更に添加し、約20分間攪拌した。次いで、チタノセン化合物を主体とした水素添加触媒を反応溶液に加え、水素ガスの供給圧を0.8MPaとして2時間水素添加反応を行い、水素の吸収が終了した時点で、反応溶液を常温、常圧に戻して反応容器より抜き出した。その後、反応溶液を水中に攪拌投入して溶媒を水蒸気蒸留により除去することによって、水素添加ブロック重合体A2を得た。得られた水素添加ブロック重合体A2の水素添加率は98%、重量平均分子量は29万、水素添加前ポリマーの1段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は14%、水素添加前ポリマーの2段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は35%であった。

【0062】

(3) ブタジエンブロック重合体の水素化物 (A3)

窒素置換された内容積50リットルの反応容器に、シクロヘキサン25kg、テトラヒドロフラン1g、1,3-ブタジエン1500g及びn-ブチルリチウム4.1gを投入し、70℃で断熱重合を行った。反応完結後、反応溶液の温度を5℃とし、テトラヒドロフラン350g及び1,3-ブタジエン3500gを添加して更に断熱重合した。30分後、メチルジクロロシラン2.9gを添加し、15分反応を行い、反応を完結させた。

次に、水素ガスを0.4MPa-Gの圧力で供給し、反応溶液を攪拌しながら、リビングアニオンとして生きているポリマー末端リチウムと20分間反応させ、水素化リチウムとした。その後、反応溶液を90℃としてテトラクロロシラン0.9gを更に添加し、約20分間攪拌した。次いで、チタノセン化合物を主体とした水素添加触媒を反応溶液に加え、水素ガスの供給圧を0.8MPaとして2時間水素添加反応を行い、水素の吸収が終了した時点で、反応溶液を常温、常圧に戻して反応容器より抜き出した。その後、反応溶液を水中に攪拌投入して溶媒を水蒸気蒸留により除去することによって、水素添加ブロック重合体A3を得た。得られた水素添加ブロック重合体A3の水素添加率は99%、重量平均分子量は30万、水素添加前ポリマーの1段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は15%、水素添加前ポリマーの2段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は78%であった。

【0063】

(4) オレフィン系重合体 (A4)

エチレンに由来する構造単位を75.1モル%、プロピレンに由来する構造単位を22.8モル%、5-エチリデン-2-ノルボルネンに由来する構造単位を1.8モル%、及び8-メチル-8-カルボキシテトラシクロ[4.4.0.1^{2,5}.1^{7,10}]-3-ドデセンに由来する構造単位を0.3モル%含み、重量平均分子量(Mw)が 16.0×10^4 である官能基含有オレフィン系共重合体100部をトルエン1000部に溶解した後、官能基含有オレフィン系共重合体中の官能基1当量に対して、1当量のジルコニウム(IV)ブトキシド(85%の1-ブタノール溶液(和光純薬工業社製)を使用)を加え、80℃で1時間攪拌した後、トルエンを乾燥除去して重合体A4を得た。

【0064】

1-2. 液状物質

B1; 40℃における動粘度が $30.85 \text{ mm}^2/\text{s}$ である鉱物油系軟化剤(出光興産社

出証特2004-3096979

製、商品名「PW-32」)である。

B2; 40℃における動粘度が95.54 mm²/sである鉱物油系軟化剤(出光興産社製、商品名「PW-90」)である。

B3; 40℃における動粘度が381.6 mm²/sである鉱物油系軟化剤(出光興産社製、商品名「PW-380」)である。

【0065】

また、比較例に用いる柔軟性重合体組成物(viii)として、熱可塑性ポリウレタン(クラレ社製、商品名「クラミロンU1190」)A5を用いた。

【0066】

【表1】

表1

		柔軟性重合体組成物							
		(i)	(ii)	(iii)	(iv)	(v)	(vi)	(vii)	(viii)
重合体 (部)	A1	100	100	100			100		
	A2				100				
	A3					100			
	A4							100	
	A5								100
液状物質 (部)	B1	1,600	800	400					
	B2				800	800			
	B3						800		

【0067】

2. 有機EL用透明封止材の作製及びその評価

実施例1

上記柔軟性重合体組成物(i)を用い、コーター成形により板状薄肉体を得て、これを有機EL用透明封止材とした。この有機EL用透明封止材を以下の方法で評価した。その結果を表2に示す。

(1) 全光線透過率及びヘイズ

厚さ0.7 mmの熔融成形アルミノケイ酸薄板ガラス(コーニング社製、商品名「Corning 1737」)2枚の間に、厚さ0.5 mmの薄肉体をはさみ、25℃における全光線透過率(%)及びヘイズ(%)を、全光線透過率ヘイズ測定装置(BYK-Gardner社製、商品名「Haze-gard plus 4725」)により測定した。尚、透明度は、ヘイズが5%未満である場合を「○」、5%以上である場合を「×」とした。

(2) 粘弾性

剪断貯蔵弾性率(G')及び $\tan \delta$ を、動的粘弾性測定装置(レオロジー社製「MR-500」)により、温度30℃、1 Hzの条件で測定した。尚、 G' は、70℃、1 Hzの条件でも測定した。

(3) 耐熱性

上記剪断貯蔵弾性率の30℃における値(G'_{30})と70℃における値(G'_{70})との比の指数をとり、3.00未満を「○」、3.00以上を「×」とした。

(4) 画像の視認性

厚さ500 μ mの有機EL用透明封止材に印刷物を密着させ、印刷物の視認性を目視にて判定した。良好な場合を「○」、不良な場合を「×」とした。

【0068】

(5) ダークスポット

また、上記柔軟性重合体組成物(i)から作製した厚さ500 μ mの有機EL用透明封止材を、図3に示すような、絶縁性透明ガラスからなる基板31の上に、陽極層32、そ

の上面に発光層 33、更にその上面の陰極層 34 の上に静置した。その後、封止部材 4 として絶縁性透明ガラスを設置して、図 1 のような EL ディスプレイパネルのモデルを作製した。

次に、上記モデルを、80℃で100時間加熱し、その後、室温(25℃)まで冷却した後、発光素子を起動させ、ダークスポット(非発光箇所)を観察した。ダークスポットの面積が全体に対して5%未満の場合を「○」、5%以上の場合を「×」とした。

【0069】

実施例 2～6

上記柔軟性重合体組成物(ii)～(vi)を用い、実施例1と同様にして有機EL用透明封止材を得た。各有機EL用透明封止材を評価し、その結果を表2に併記する。

【0070】

実施例 7

上記柔軟性重合体組成物(vii)(重合体A4)を用い、200℃で加熱プレスし、厚さ500μmの有機EL用透明封止材を得た。この有機EL用透明封止材を、実施例1と同様に評価した。その結果を表2に併記する。

【0071】

比較例 1

上記柔軟性重合体組成物(viii)(重合体A5)を用い、160℃で加熱プレスし、厚さ500μmの有機EL用透明封止材を得た以外は、実施例7と同様に評価した。その結果を表2に併記する。

【0072】

【表2】

表2

	実 施 例						比較例
	1	2	3	4	5	6	7
歪み (%)	2.4	3.2	4.5	2.5	2.6	2.6	3.0
透明度	○	○	○	○	○	○	×
全光線透過率 (%)	94	94	93	94	94	94	93
剪断貯蔵弾性率G' (dyn/cm ²)	1,900	5,800	27,300	10,700	5,500	6,100	1,240,000
	100	1,900	11,700	3,900	1,800	2,300	429,000
log(G' ₃₀ /G' ₇₀)	1.28	0.48	0.37	0.44	0.49	0.42	0.46
耐熱性	○	○	○	○	○	○	×
tan δ (30℃)	0.224	0.106	0.144	0.186	0.148	0.276	0.143
視認性	○	○	○	○	○	○	×
ダークスポットの有無	○	○	○	○	○	○	×

【0073】

3. 評価結果について

表2より、比較例1は、透明性に劣るため、画像の視認性が不良であった。また、ダークスポットの面積も大きくなった。一方、実施例1～7はいずれも透明性、柔軟性に優れ、ELディスプレイパネル内部に生じる空間部を空隙なく密着させて埋めることができた

出証特2004-3096979

。また、画像の視認性が高く、ダークスポットの発生も十分に抑制することができた。

【産業上の利用可能性】

【0074】

本発明の有機EL素子用透明封止材は、視認性の高い有機ELディスプレイパネルに好適であり、携帯電話、携帯情報端末、デスクトップ型コンピュータ、ノート型コンピュータ、テレビジョン、車載用情報機器、時計等に用いることができる。

【図面の簡単な説明】

【0075】

【図1】ELディスプレイパネルを示す説明断面図である。

【図2】他のELディスプレイパネルを示す説明断面図である。

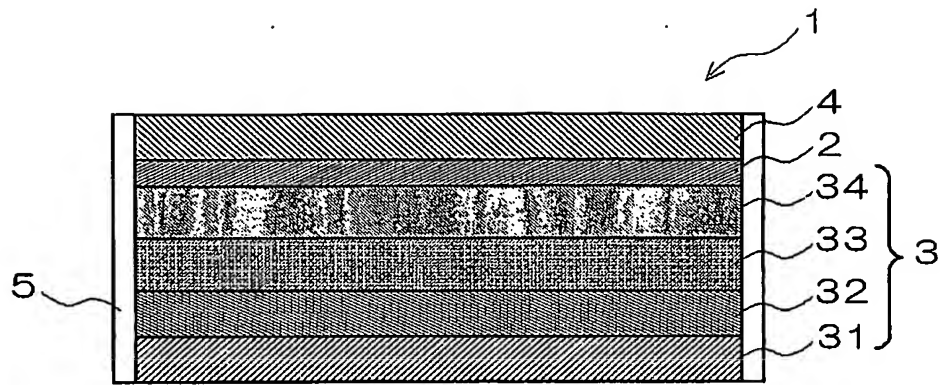
【図3】発光素子を示す説明断面図である。

【符号の説明】

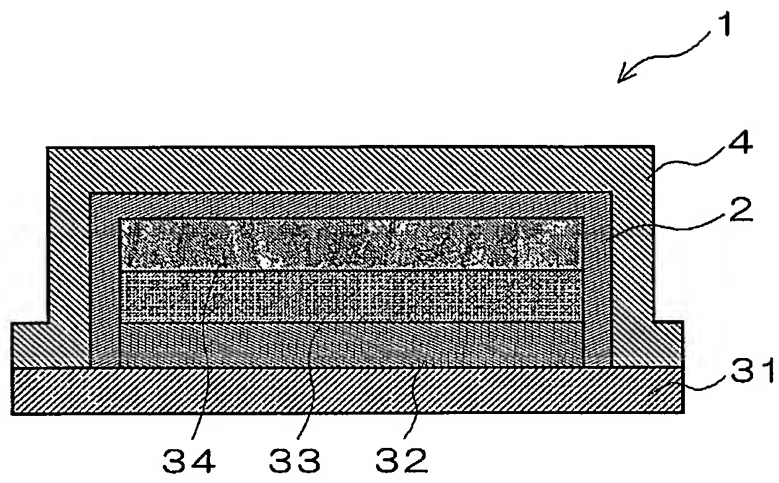
【0076】

1；ELディスプレイパネル、2；有機EL用透明封止材、3；発光素子、31；基板、32；陽極層、33；発光層、34；陰極層、4；封止部材、5；筐体。

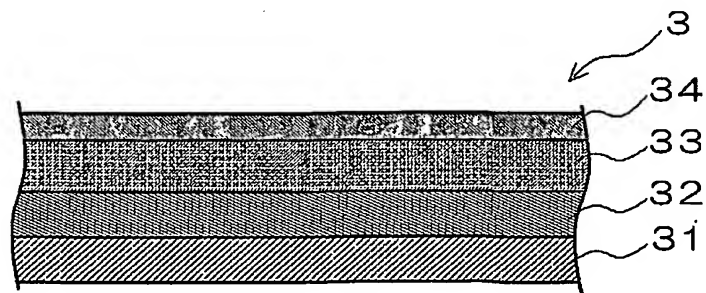
【書類名】 図面
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書**【要約】**

【課題】 柔軟性に優れ、有機EL素子を十分に封止することができ、有機ELディスプレイとした場合、ダークスポットの発生を抑制することができ、それによる画像の視認性を高くすることができる有機EL用透明封止材を提供する。

【解決手段】 本有機EL用透明封止材2は、基板31と、陽極層32と、発光層33と、陰極層34と、を順次含む発光素子3、及び、この発光素子3の発光面側に配設される封止部材4を備えるエレクトロルミネッセンスディスプレイパネル1に用いられ、柔軟性重合体組成物から形成され、且つ、発光素子3の発光面と封止部材4との間に配設される。

【選択図】 図1

特願 2003-346262

出願人履歴情報

識別番号

[000004178]

1. 変更年月日
[変更理由]

2003年 9月 1日

住所
氏名

名称変更

東京都中央区築地五丁目6番10号
J S R株式会社